

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
6. Dezember 2001 (06.12.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/93354 A2**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **H01M 8/00**

Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York,  
NY 10022 (US).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/06175

(72) Erfinder; und

(22) Internationales Anmeldedatum:  
31. Mai 2001 (31.05.2001)

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Arthur  
[DE/DE]; Pfarrweg 5, 94121 Salzweg (DE).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Postfach 26  
64, 84010 Landshut (DE).

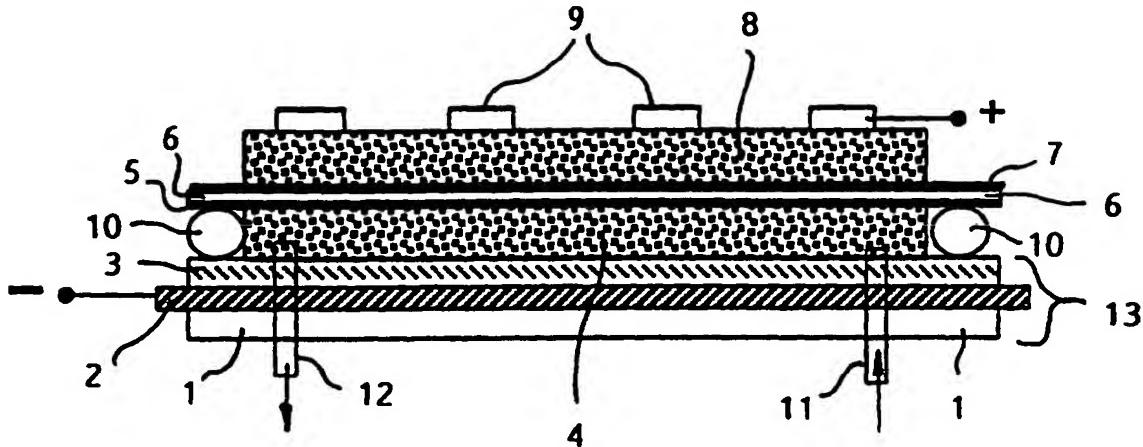
(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch  
(30) Angaben zur Priorität:  
100 27 069.7 31. Mai 2000 (31.05.2000) DE

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,  
GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC,  
LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: FUEL CELL SYSTEM AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: BRENNSTOFFZELLENANORDNUNG UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



(57) Abstract: In prior art polymer-electrolyte membrane (PEM) fuel cells, mechanical compression devices are used which mostly serve to counteract the reactants supplied with overpressure. The heavy weight and large volume of these devices and the associated costs are decisive drawbacks for the practical use of fuel cells. According to the invention, the coatings are held together by chemical bonding agents without the provision of mechanical devices. The invention enables the avoidance of all the above-mentioned drawbacks due to the use of simple and economical laminating processes thereby eliminating the need for mechanical compression devices. The inventive laminating processes are particularly suited for the use of PEM fuel cells in the mobile domain and for a planar configuration of the individual cells, in which a plurality of individual or double cells are adjacently placed on a flat or curved surface.

(57) Zusammenfassung: Bei bisher bekannten PEM Brennstoffzellen werden Vorrichtungen zur mechanischen Kompression verwendet, die meist dazu dienen, den mit Überdruck zugeführten Reaktanden entgegenzuwirken. Das hohe Gewicht und Volumen dieser Vorrichtungen und die damit verbundenen Kosten sind für die praktische Anwendung von Brennstoffzellen von entscheidendem Nachteil. Gemäss der Erfindung werden die Schichten ohne mechanische Vorrichtungen durch chemische Bindemittel zusammengehalten. Mit der Erfindung können somit einfacher und kostengünstiger

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

**WO 01/93354 A2**



MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für alle Bestimmungsstaaten
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

- hinsichtlich der Identität des Erfinders (Regel 4.17 Ziffer i) für alle Bestimmungsstaaten

**Veröffentlicht:**

- ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

---

Laminierungsprozesse alle oben aufgeführten Nachteile durch Eliminierung der Vorrichtungen zur mechanischen Kompression vermieden werden. Die erfundungsgemäßen Laminierungsprozesse eignen sich insbesondere bei dem Einsatz von PEM-Brennstoffzellen im mobilen Bereich sowie bei einer planaren Anordnungen der einzelnen Zellen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzel- oder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden.

Brennstoffzellenanordnung und Verfahren zu ihrer Herstellung

Die Erfindung bezieht sich auf eine Brennstoffzellenanordnung, enthaltend  
5 mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht angeordneten Polymerelektrolytmembran, beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusions- schichten und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend wenigstens einer Abschlußschicht, und auf ein Verfahren zu ihrer Herstellung,  
10 und betrifft speziell PEM-Brennstoffzellen hoher Leistungsdichte, die ohne äußere, mechanische Kompressionsvorrichtungen funktionsfähig sind und durch Laminierungsprozesse hergestellt sind.

Das zentrale Bauteil einer PEM-Brennstoffzelle ist eine Polymerelektrolyt-  
15 Membran (PEM). Sie hat die Aufgabe, die für Brennstoffzellen typischen Reaktanden, z. B. Wasserstoff oder Methanol als Brennstoff und Luft bzw. reinen Sauerstoff als Oxidationsmittel, zu trennen, H<sup>+</sup> Ionen zu leiten und elektronisch

zu isolieren. Auf beiden Seiten der Membran sind Katalysatorschichten aufgebracht. Zur Verteilung der meist gasförmigen Reaktanden und zur Ableitung des im Betrieb entstehenden Stroms werden gut leitfähige poröse Schichtmaterialien und evtl. zusätzlich Kanalstrukturen verwendet. Die Reaktanden werden in diesen Strukturen separat auf beiden Seiten der Membran geführt. Zumindest die Brennstoffseite muß zum umgebenden Luftraum mittels einer gasdichten Abschlußschicht oder -platte (z. B. einer sog. Bipolarplatte) und einer Dichtung abgeschlossen werden.

5

Beim Betrieb der Zelle werden an der Katalysatorschicht der Brennstoffseite der Membran (Anode) Elektronen und H<sup>+</sup> Ionen frei. Auf der gegenüberliegenden Katalysatorschicht, der Kathode, werden die über einen äußeren Stromkreis geführten Elektronen mit den durch die Membran wandernden H<sup>+</sup> Ionen und dem Oxidationsmittel (z. B. Sauerstoff aus der Luft) zum Reaktionsprodukt (z. B. Wasser) vereinigt. Bei diesem Prozeß entsteht zwischen den beiden Katalysatorschichten eine Potentialdifferenz, die im äußeren Stromkreis genutzt werden kann.

15

Um geringe elektrische Übergangswiderstände zwischen den einzelnen Schichtmaterialien zu erhalten, werden im Stand der Technik Vorrichtungen zur mechanischen Kompression senkrecht zur Membranfläche von einzelnen Zellen oder Stapeln von Zellen verwendet (vgl. PCT/EP 00/03542 oder US 5,484,666). Die mechanische Kompression dient weiterhin dazu, der Druckkraft der meist mit Überdruck zugeführten Reaktanden (z. B. Wasserstoff) entgegenzuwirken. Die Vorrichtung zur Kompression besteht häufig aus zwei miteinander verschraubten massiven Platten, zwischen denen sich die Brennstoffzelle oder der Brennstoffzellenstapel befindet. Der von diesen Vorrichtungen auf die Zellen aufgebrachte Druck liegt typischerweise zwischen  $5 \cdot 10^5$  und  $15 \cdot 10^5$  Pa (5 und 15 bar).

20

Das hohe Gewicht und Volumen dieser Platten und die damit verbundenen Kosten sind für die praktische Anwendung von Brennstoffzellen insbesondere im mobilen Bereich von entscheidendem Nachteil. Am extremsten sind die Auswirkungen dieser Platten auf die Leistungsdichte der Brennstoffzellen bei planaren Anordnungen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzel- oder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden. Im Gegensatz zu Stapelanordnungen ist hier die Fläche der Spannplatten ähnlich groß wie die gesamte aktive Fläche der Zellenanordnung.

Mit der vorliegenden Erfindung können alle oben aufgeführten Nachteile durch Eliminierung der Vorrichtungen zur mechanischen Kompression vermieden werden.

Durch die Erfindung sollen Brennstoffzellenanordnungen hoher Leistungsdichte ohne Verwendung von Vorrichtungen zur mechanischen Kompression geschaffen werden, wozu vorzugsweise einfache und kostengünstige Laminierungsprozesse zur Herstellung derartiger Brennstoffzellenanordnungen angewandt werden.

Dies wird, ausgehend von der eingangs genannten Brennstoffzellenanordnung, dadurch erreicht, daß die Membran, die Katalysatorschichten, die Gasdiffusionschichten und die wenigstens eine Abschlußschicht der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch ionenleitende chemische Bindemittel, insbesondere Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste, miteinander verbunden sind, ohne daß die Anordnung bzw. die Zelle eine sie zusammenpressende mechanische Vorrichtung umfaßt, bzw. dadurch, daß bei der Herstellung der Zelle die Membran, die Katalysatorschichten, die Gasdiffusionsschichten und die Abschlußschicht(en) der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv durch ionenleitende Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste verbunden werden. Die größten Vorteile der Erfindung ergeben sich bei der Anwen-

dung auf planare Anordnungen von Einzel- und Doppelzellen.

Das Verbinden von Schichten, nämlich einer Polymerelektrolyt-Membran mit zwei Gasdiffusionselektronen, durch Aufwenden von Wärme und Druck ist an sich bekannt, z. B. aus der EP 0 935 304 A.

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung finden sich in den jeweiligen Unteransprüchen.

Weitere Einzelheiten, Vorteile und Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung eines bevorzugten Ausführungsbeispiels unter Bezugnahme auf die Zeichnung. Es zeigen:

- Fig. 1 einen Querschnitt durch eine einzelne Brennstoffzelle;
- Fig. 2 eine Draufsicht auf eine planare Anordnung von drei Brennstoffzellen auf einem gemeinsamen Substrat;
- Fig. 3 einen Querschnitt durch eine Doppel-Brennstoffzelle.

Eine Brennstoffzelle gemäß Fig. 1 besteht, in stapelförmigem Aufbau von unten nach oben, aus einem Substrat 1, einem auf diesem angeordneten Anoden-Stromableiter 2, an den sich weiterhin eine Kohlenstoff-Komposit-Schicht 3 und an diese wiederum eine Anoden-Gasdiffusionsschicht 4 anschließt. Diese Schicht 4 trägt an ihrer in der Zeichnung oberen Seite einen Katalysator 5, der unmittelbar an einer Membran 6 anliegt, deren gegenüberliegende Seite durch eine kathodenseitige Schicht eines Katalysators 7 bedeckt ist. An diese Schicht schließt sich auf der membranabgewandten Seite eine kathodische Gasdiffusionsschicht 8 an, auf welcher schmale Leiterbahnen 9, gegebenenfalls auch nur Drähte, als Stromableiter aufgebracht sind. Die Anoden-Gasdiffusionsschicht 4 bildet einen Gasraum, der mit Hilfe einer Dichtung 10 abgedichtet ist und über einen Wasserstoffeinlaß 11 mit brennbarem Gas versorgt wird, das bzw. dessen

Reaktionsprodukte über einen Auslaß 12 wieder abgeleitet werden. Das Substrat 1, der Anoden-Stromableiter 2 und die Kohlenstoff-Komposit-Schicht 3 bilden zusammen eine Abschlußschicht 13. Bei anderen Ausführungen besteht die Abschlußschicht auch eventuell nur aus den Schichten 2 und 3, oder auch 5 überhaupt nur aus dem Stromableiter 2.

Zellen der in Fig. 1 gezeigten Art können beispielsweise planar nebeneinander gemeinsam auf dem Substrat 1 angeordnet sein, auf dem die Anoden-Stromableiter 2 mit trennenden Zwischenräumen 14 angeordnet sind. Die Anschlüsse 10 der einzelnen Teile der Anoden-Stromableiter 2 sind bei 15 dargestellt; sie sind zwecks Serienschaltung der drei Zellen jeweils mit einem Sternpunkt der Kathoden-Stromableiter 9 verbunden. Die beiden Stromabnahme-Pole sind mit "+" und "-" gekennzeichnet.

15 Die einzelnen Zellen weisen keine durchgehenden Schraubbolzen oder dergleichen zum Verpressen auf, sondern sind durch passende Bindemittel miteinander verklebt. Durch zweckmäßige Wahl dieser Bindemittel ist die Druckfestigkeit der Anordnung trotz eines gewissen Überdrucks in der Anoden-Gasdifusions-schicht 4 gewahrt.

20 Die Zellen können auch als Stapel zusammengestellt sein, beispielsweise als Doppelzelle gemäß Fig. 3, die am Substrat 1 gespiegelt ist. Auch solche Zellen sind ohne mechanische Verpreßmittel aufgebaut.

25 Um Brennstoffzellen hoher Leistungsdichte ohne Vorrichtungen zur mechanischen Kompression zu realisieren, müssen alle verwendeten Schichtmaterialien mechanisch stabil und mit geringem elektrischem Übergangswiderstand verbunden sein. Die Druckkräfte des anodenseitigen Brennstoffes (beispielhaft wird im folgenden von Wasserstoff ausgegangen) müssen mindestens von den 30 folgenden Grenzflächen (Fig. 1) aufgenommen werden:

- Membran 6/Katalysatorschicht 5
- Katalysatorschicht 5/Gasdifusionsschicht 4
- Gasdiffusionsschicht 4/Abschlußschicht 13

5 Wird mittels einer weiteren Abschlußschicht die Oxidationsmittelseite geschlossen (beispielhaft wird im Folgenden von Luft ausgegangen) und die Zelle evtl. mit Überdruck betrieben, so ist die analoge Schichtfolge mechanisch zu verbinden. Bei offener Kathode wie in Fig. 1 dargestellt handelt es sich um die Übergänge

10

- Membran 6/Katalysatorschicht 7
- Katalysatorschicht 7/Gasdifusionsschicht 8
- Gasdiffusionsschicht 8/Stromableiter 9

15 Selbst unter delaminierender Druckbelastung durch den Wasserstoff muß ein geringer Übergangs- und Durchgangswiderstand durch die Schichtmaterialien gewährleistet sein. Die typischerweise verwendeten Wasserstoffüberdrücke liegen bei  $10^4$  bis  $2 \cdot 10^5$  Pa (0,1 - 2 bar). Die beschriebene Folge von mechanisch verbundenen (laminierten) Schichten kann sinngemäß für alle üblichen Zellanordnungen wie bipolarer Stapel, monopolarer Stapel, Einzelzellen und quasi monopolare Doppelzellen verwendet werden. Für eine spezielle Anordnung nutzlose Schichten wie z. B. das Substrat 1 für die inneren Zellen eines 20 bipolare Stapels können auch weggelassen werden.

25 Die Abschlußschicht hat bei verschiedenen Zellanordnungen teilweise verschiedene Funktionen. Die Anforderungen an Gasdichtigkeit und Leitfähigkeit parallel zur Schichtebene sind unterschiedlich. Alle Anforderungen können von der erfindungsgemäßen Abschlußschicht insbesondere nach Beispiel 1 erfüllt werden.

In den Abbildungen und der folgenden Beschreibung wird auf Kanalstrukturen zur Gasführung in der Gasdiffusions- und/oder Abschlußschicht mit Ausnahme von Beispiel 1 nicht explizit eingegangen.

5 Die Abschlußschicht 13 umfaßt ein Material mit einer elektrischen Leitfähigkeit parallel und senkrecht zur Zellebene, die ausreichend ist, den im Betrieb produzierten elektrischen Strom ohne wesentlichen Spannungsabfall zum Kontaktpunkt 15 zu transportieren. Um die Verwendung teurer Edelmetalle, die als einzige Metalle auf der leicht sauren Anodenseite chemisch stabil sind,  
10 zu vermeiden, wird bevorzugt eine durchgehende oder geschlitzte Nichtedelmetall-Folie (z. B. Kupfer) verwendet, die mit einer leitfähigen dichten Schutzschicht versehen ist. Bevorzugt wird dabei das in Beispiel 1 beschriebene Laminierverfahren angewendet, das auf einem leitfähigen vorgeformten Schichtmaterial, wie es aus der WO 00/10174 bekannt ist, beruht. Für Anwendungen,  
15 bei denen eine hohe mechanische Stabilität gegen Knicken der Zellfläche gefordert ist, kann eine Metallfolie auf einem möglichst steifen Substrat mit geringer Dichte fixiert werden. Besonders gute Eigenschaften weisen glas- oder kohlefaser verstärkte Epoxidharzplatten auf. Am einfachsten ist die Verwendung einer durchgehend oder teilweise mit Kupfer beschichteten Elektronikplatine,  
20 die aufgrund von Massenproduktion sehr kostengünstig verfügbar ist.

Die Membran 6, die Katalysatorschichten 5, 7 und die Gasdiffusionsschichten 4, 8 können durch Heißpressen unter Verwendung eines Hilfspolymers bevorzugt in einem einzigen Arbeitsgang zur sogenannten Membran-Elektroden-Einheit (membrane-electrode-assembly: MEA) verbunden werden. Die dabei auftretenden Temperaturen von bis zu 180° C (bevorzugt bis zu 140° C) und Drücke bis zu  $5 \cdot 10^7$  Pa (500 bar, bevorzugt bis zu 250 bar) stellen hohe Anforderungen an die verwendeten Materialien. Bezüglich der Druckstabilität sind ungefüllte handelsübliche Kohlefaserpapiere (Fa. Toray, Japan) als Gasdiffusionsschicht meist nicht geeignet. Geeignete sehr druckstabile Gasdiffusions-

schichten sind aus dem US-Patent US 5,998,057 bekannt. Verbesserungen dieses Materials bezüglich Zugbeanspruchungen senkrecht zur Schichtebene mittels Einbringen von Kunsthärzen sind in Beispiel 3 und 4 der WO 00/10174 dargestellt. Diese verbesserten Materialien lassen sich nicht nur als Verstärkung von Gasdiffusionsschichten, wie in dieser Druckschrift offenbart, sondern auch als vollständige Gasdiffusionsschichten einsetzen.

Als Hilfspolymere finden Nafion™ (Dupont), PTFE, THV™ (Dyneon) und nicht fluorierte Thermoplaste wie z. B. PE, PP und PS Verwendung. Eine geeignete Anwendung mehrerer dieser Polymere vergrößert die Haftkraft im Vergleich zum Stand der Technik und liefert einen nennenswerten Beitrag zur vorliegenden Erfindung. Die Polymere können vor dem Heißpressen der Gasdiffusions- und der Katalysatorschicht in Form von Pulver, Vliesen, Folien, Suspensionen oder Lösungen beigegeben sein. Durch die Anwendung der erhöhten Temperatur und des Drucks schmelzen oder erweichen diese Polymere und verbinden die Schichtmaterialien innig. Detaillierte Verfahren sind in den nachfolgenden Beispielen 2 und 3 beschrieben.

Die leitfähige mechanische Verbindung der Abschlußschicht und der MEA erfolgt z. B. durch Auftrag eines aushärtbaren Harzes wie Epoxid-, Furan- oder Phenolharz auf die Oberfläche der Anode und/oder auf die der Anode zugewandte Oberfläche der Abschlußschicht. Das Aushärten erfolgt bevorzugt unter Druck bei erhöhter Temperatur.

Um zu vermeiden, daß das Harz einen zu großen Anteil der Poren der Elektrode blockiert, kann auf die Elektrode oder die entsprechende Oberfläche der Abschlußschicht zuvor eine mikroporöse, leitfähige Schicht z. B. aus Ruß aufgebracht werden, die das während des Aushärtevorgangs flüssige Harz aufnimmt. Aufgrund der größeren Kapillarkräfte in der feinporigen Schicht dringt das Harz nur wenig in die Elektrode ein.

Alternativ führt auch das Heißverpressen der Abschlußschicht und der MEA mit einem dazwischen positionierten thermoplastischen Material in Form einer Folie oder eines Vlieses zu einer festen, leitfähigen Verbindung.

5 Bevorzugt wird mit diesem Verfahrensschritt auch die Abdichtung des freien Membranrandes mit der Abschlußplatte durchgeführt. Bevorzugt wird eine Klebedichtung mit kalt- oder heißhärtenden Silikonen nach der WO 00/02279 angebracht. Besonders bevorzugt kann eine Klebedichtung ohne freien Membranrand auch nach DE 19703214 C verwendet werden. Beispiel 4 enthält eine  
10 detaillierte Beschreibung eines der Verfahren.

Der in Fig.1 dargestellte Kathodenstromableiter bedeckt die Kathode nur teilweise, damit der Sauerstoff der Luft bis zum Katalysator diffundieren kann. Er besteht bevorzugt aus einer Metallfolie (z. B. Kupfer), die entweder mit einem  
15 Edelmetall oder nach dem Verfahren in Beispiel 1 (Abschlußschicht) ein- oder beidseitig beschichtet ist. Die Laminierung des Stromableiters auf die Kathode bzw. die MEA erfolgt analog dem Verfahren zur Verbindung der Anode mit der Abschlußschicht.

20 Alternativ kann der Kathodenstromableiter auch als Gitter oder geschlitzte Metallfolie zwischen zwei kathodischen Gasdiffusionslagen während des oben erwähnten Verstärkungsverfahrens eingelegt und dann mittels Druck- und Temperaturerhöhung einlaminiert werden.

25 **Beispiel 1:**

30 Im Sinne von Beispiel 1 aus WO 00/10174 wird ein Kohlefaservlies ( $3 \text{ mg/cm}^2$ ) mit einer Dispersion aus expandierten, gemahlenem Graphit, Leitruß und PTFE ein- oder mehrmals durch Einwalzen imprägniert und nach jedem Imprägnierungsschritt getrocknet. Der Massenanteil an Graphit bezogen auf die einge-

brachten Kohlenstoffmaterialien beträgt 10 bis 100 %, bevorzugt 40 bis 75 %. Der Anteil von PTFE and den gesamten eingebrachten Feststoffen beträgt etwa 3 bis 10 %. Nach Trocknen und Sintern beträgt die flächenbezogene Gesamtmasse des imprägnierten Vlieses 6 bis 25 mg/cm<sup>2</sup>, bevorzugt 8 bis 14 mg/cm<sup>2</sup>.  
5 Dieses noch poröse Schichtmaterial wird mit einer Lösung aus Kunstharz, z. B. Epoxidharz, in Aceton getränkt und die Lösungsmittel werden abgedampft. Der Kunstharzanteil in der Lösung liegt bei 10 bis 90 %, und bevorzugt bei 40 bis 60 %. Ein oder mehrere dieser Kunstharz enthaltenden Vliese werden auf eine Kupferfolie oder eine Elektronikplatine mit frei liegenden Leiterbahnen oder  
10 einer freien aber geschlossenen Kupferfläche gelegt und bei evtl. erhöhter Temperatur verpreßt, bis das Kunstharz vollständig oder teilweise ausgehärtet ist. Die entstehende Schicht haftet gut auf der Metallschicht, ist dicht und weist einen geringen Durchgangswiderstand und einen geringen Übergangswiderstand zu anderen Kohlenstoffmaterialien auf. Beide Widerstände zusammen betragen  
15 typischerweise weniger als 40 mOhm • cm<sup>2</sup>.

Die Leiterbahnen auf der Elektronikplatine können bezüglich Dicke und geometrischer Struktur so gestaltet werden, daß sich Kanäle zur Führung der Reaktionsgase, nämlich insbesondere Wasserstoff, ausbilden. Nach Beschichtung  
20 bleibt diese Kanalstruktur im wesentlichen erhalten.

#### Beispiel 2:

Die nachstehende Schichtfolge wird bei 190° C für 15 Sekunden mit einem Druck  
25 von 10<sup>7</sup> Pa (100 bar) verpreßt:

- Gasdiffusionsschicht
- Polypropylenfolie 3,5 µm dick
- Membran beidseitig beschichtet mit Katalysator enthaltend Nafion™ oder  
30 ein verwandtes Ionomer

- Polypropylenfolie 3,5  $\mu\text{m}$  dick
- Gasdiffusionsschicht

Es entsteht eine mechanisch fest verbundene und elektrochemisch aktive MEA.

5 Die obigen numerischen Daten sind nur Beispiele und können großen Variationen unterworfen werden. Weiterhin können statt Polypropylen auch andere Thermoplaste wie etwa Polyethylen eingesetzt werden. Die Verarbeitungstemperatur kann in diesem Fall deutlich gesenkt werden.

10 Eine feste Verbindung entsteht auch, wenn die Gasdiffusionsschicht, eine zusätzliche Lage auf dieser Gasdiffusionsschicht oder die Katalysatorschicht pulverförmige Thermoplasten enthalten.

#### Beispiel 3:

15 Verwendet werden zwei einseitig nach der US 5,998,057 mit Katalysator beschichtete Gasdiffusionsschichten und eine beidseitig mit Katalysator beschichtete Polymerelektrolytmembran, z. B. PRIMEA<sup>TM</sup> MEA von Gore. Alle Katalysatorschichten werden ein oder mehrmals mit einer 0,5 - 5%igen Nafion<sup>TM</sup> Lösung besprüht und anschließend getrocknet. Um durch die Lösungsmittel verursachte Wellungen der Membran zu vermeiden, wird sie während des Besprühens und Trocknens auf einen feinporigen, nichtmetallischen Vakuumtisch gespannt. Die beiden Gasdiffusionsschichten werden mit den katalysierten Seiten der Membran zugewandt, beiderseits der Membran positioniert und bei ca. 140° C mit bis zu  $3 \cdot 10^7$  Pa (300 bar) Druck für etwa 2 Minuten verpreßt.  
20 Es entsteht ein mechanisch fester Verbund.

25

#### Beispiel 4:

30 Die der Anode zugewandte Seite der Abschlußschicht 13 wird mit einer Disper-

sion aus Leitruß, expandiertem Graphit und PTFE in den bezüglich der Massen 1 : 1 gemischten Dispersionsflüssigkeiten Isopropanol und Wasser ein- oder mehrmals mit Zwischentrocknen besprüht. Bezuglich der gesamten Feststoffe beträgt der Anteil an PTFE typischerweise 3 bis 10 %. Das Massenverhältnis von Graphit und Leitruß kann in weiten Grenzen variiert werden. Die Trockenmasse der Sprühschicht beträgt etwa 0,5 bis 3 mg/cm<sup>2</sup>. PTFE dient hier nur als Hilfsbinder für die Schicht während der Verarbeitung.

5

Ein wie in Beispiel 1 verwendetes verdünntes Kunstharz (z. B. Epoxidharz) wird 10 in geeigneter Menge auf die zuvor beschriebene Schicht aufgesprührt. Anschließend werden die Lösungsmittel abgedampft. Während beider Sprühvorgänge sollte der Dichtungsbereich der späteren Zelle ausgespart bleiben.

10

Als Randabdichtung für die Zelle wird eine Kleberaupe aus heißhärtendem 15 Silikon am Umfang der Anode auf die Abschlußschicht aufgetragen. Die MEA wird genau positioniert, auf die Abschlußschicht aufgesetzt und mit dieser heiß verpreßt, bis die Kunststoffe ganz oder teilweise ausgehärtet sind. Typische Drücke liegen im Bereich von  $10^6$  bis  $3 \cdot 10^7$  Pa (10 bis 300 bar), die Temperatur richtet sich nach den Erfordernissen zur Aushärtung von Epoxidharz und 20 Silikon.

15

Als Endprodukt dieses Verfahrensschrittes liegt ein anodenseitig gasdichter mechanisch fester Verbund aus MEA und Abschlußschicht vor. Der Kathodenstromableiter kann nachträglich laminiert werden.

20

Beispiel 5:

25

Eine planare Doppelzelle gemäß Fig. 3 von grundsätzlich an sich bekannter Bauart (z. B. WO 95/17772) mit verbundenen Anodenräumen und zwei gegenüberliegenden Kathoden wird bevorzugt mit Hilfe einer doppelseitig mit Metall 30

## 13

beschichteten Elektronikplatine aufgebaut. Die durchgehenden oder unterbrochenen Metallschichten der Platine werden wie in Beispiel 1 beschrieben mit einem Komposit aus Polymeren mit verschiedenen Kohlenstoffmaterialien beschichtet. Es entsteht somit eine doppelte Abschlußschicht. Auf beiden Seiten dieser Schicht werden Membran-Elektroden-Einheiten mit Stromableitern nach einem der oben genannten Verfahren angebracht und abgedichtet. Eine Wasserstoffzu- und eventuell -abflußbohrung verbindet und versorgt die beiden Anodenräume. Ober- und Unterseite dieser planaren Anordnung bestehen aus Kathoden. Da die Metallschichten der beiden Anoden elektrisch isoliert sind, können die beiden Zellen in Reihe geschaltet werden und liefern so eine für viele Anwendungen erforderliche höhere Spannung.

Patentansprüche:

1. Brennstoffzellenanordnung, enthaltend mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) angeordneten Polymerelektrolytmembran (6), beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8) und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend wenigstens einer Abschlußschicht (13), dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6), die Katalysatorschichten (5, 7), die Gasdiffusionsschichten (4, 8) und die wenigstens eine Abschlußschicht (13) der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch chemische Bindemittel miteinander verbunden sind.
- 15 2. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Bindemittel Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste sind.
3. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1 oder 2, mit einer Mehrzahl von als Stapel angeordneten Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß die Zellen des Stapels durch ionenleitende Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste miteinander verbunden sind.
- 20 4. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzelle eine Abschlußschicht (13) aufweist, die eine durchgehende oder unterbrochene Metallschicht (2) enthält, die zumindest anodenseitig mit einer Schicht (3) aus Kohlenstoffmaterialien und Thermo- und/oder Duroplasten versehen ist.
- 25 5. Brennstoffzellenanordnung nach dem auf Anspruch 1 oder 2 rückbezogenen Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Zellen planar auf einer

gemeinsamen Abschlußschicht (13) angeordnet sind.

6. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Abschlußschicht (13) ein gegen mechanische Verwindung stabiles Substrat (1) besitzt.

10 7. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Substrat (1) der Brennstoffzelle aus einer Elektronikplatine mit aufgedruckten Leiterbahnen oder mit einer durchgehenden Metallschicht (2) besteht.

15 8. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 3 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Abschlußschicht (13) einerseits und die Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) andererseits mit Thermo- und/oder Duroplasten leitfähig und mechanisch fest miteinander verbunden sind.

20 9. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzelle einen kathodischen Stromableiter (9) aufweist, der mit der Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) mit Thermo- und/oder Duroplasten leitfähig und mechanisch fest verbunden ist.

25 10. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, die mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-Brennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) eingeschlossenen Polymerelektrolytmembran (6) und beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8) umfaßt, dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6), die Katalysatorschichten (5, 7), die Gasdiffusionsschichten (4, 8) und die Abschlußschicht(en) (13)

der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektro-  
chemisch aktiv durch ionenleitende Polymere und/oder Thermo- und/oder  
Duroplaste verbunden werden.

- 5        11. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch  
            10, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle mit einer  
            Abschlußschicht (13) versieht, die eine durchgehende oder unterbrochene  
            Metallschicht (2) enthält, die man zumindest anodenseitig mit einer Schicht  
            (3) aus Kohlenstoffmaterialien und Thermo- und/oder Duroplasten ver-  
            sieht.
- 10        12. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch  
            10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle mit einer  
            Abschlußschicht (13) versieht, die ein gegen mechanische Verwindung  
            stabiles Substrat besitzt.
- 15        13. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch  
            12, dadurch gekennzeichnet, daß man als Substrat (1) eine Elektronik-  
            platine mit aufgedruckten Leiterbahnen oder mit einer durchgehenden  
            Metallschicht (2) verwendet.
- 20        14. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der  
            Ansprüche 10 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man die Membran (6),  
            die Katalysatorschichten (5, 7) und die Gasdiffusionsschichten (4, 8) der  
            Zelle mit den ionenleitenden Polymeren und/oder den Thermo- und/oder  
            Duroplasten durch Heißpressen verbindet.
- 25        15. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der  
            Ansprüche 10 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle  
            mit einer Abschlußschicht (13) versieht, die man mit der Baueinheit aus

der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusions-schichten (4, 8) durch Thermo- und/oder Duroplaste bevorzugt durch Heißpressen leitfähig und mechanisch fest verbindet.

- 5        16. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 10 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß man die Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusions-schichten (4, 8) mit einem kathodischen Stromableiter (9) durch Thermo- und/oder Duroplaste bevorzugt durch Heißpressen leitfähig und mecha-nisch fest verbindet.
- 10

1/2

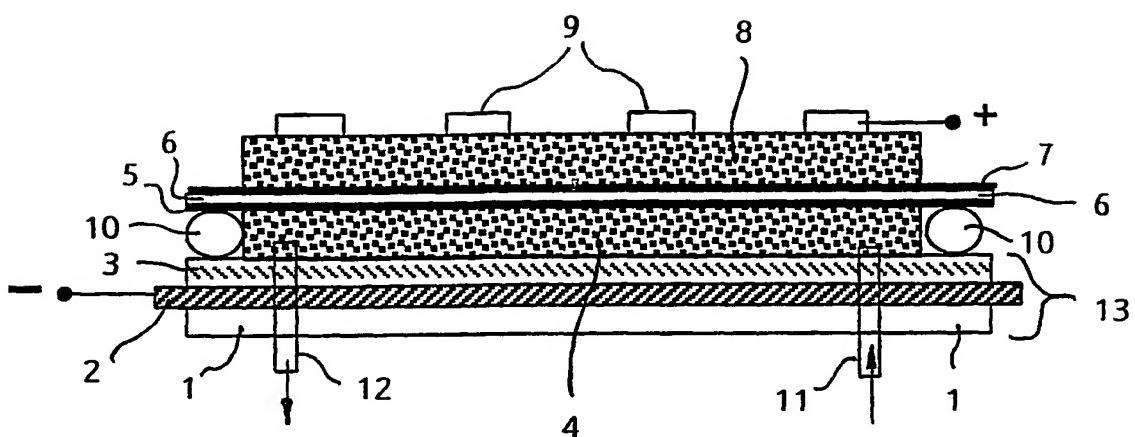


Fig. 1

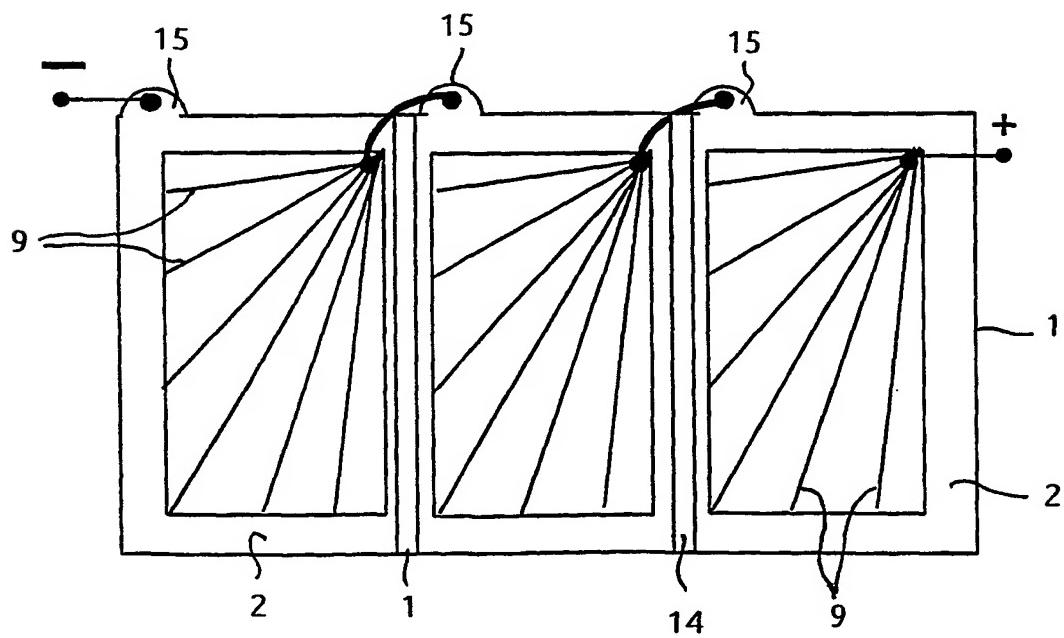
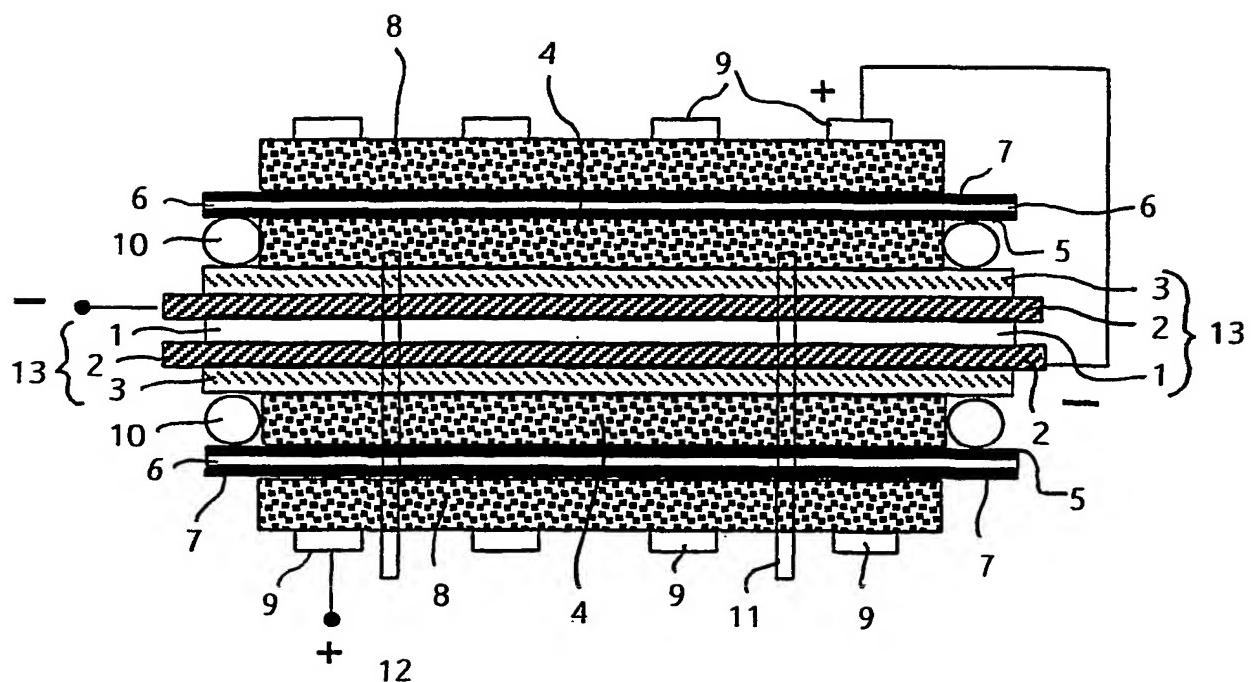


Fig. 2

2/2



**Fig. 3**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
6. Dezember 2001 (06.12.2001)

PCT

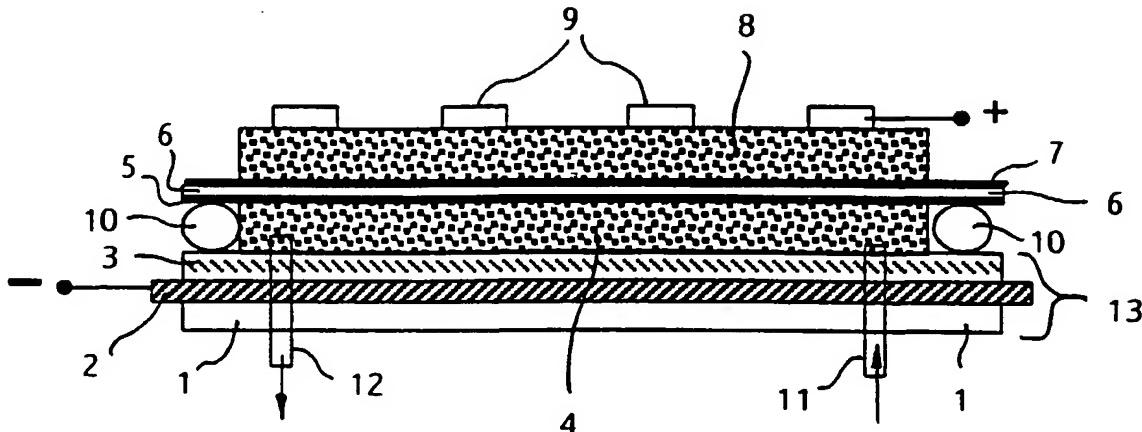
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/093354 A3**

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **H01M 8/10**, 8/24, 8/02
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **MANHATTAN SCIENTIFICS, INC.** [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/06175
- (72) Erfinder; und
- (22) Internationales Anmeldedatum: 31. Mai 2001 (31.05.2001) (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KOSCHANY, Arthur** [DE/DE]; Pfarrweg 5, 94121 Salzweg (DE).
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (74) Anwalt: **RIEDERER VON PAAR, Anton**; Postfach 26 64, 84010 Landshut (DE).
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,
- (30) Angaben zur Priorität:  
100 27 069.7 31. Mai 2000 (31.05.2000) DE

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: POLYMER-ELECTROLYTE MEMBRANE (PEM) FUEL CELL SYSTEM AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: PEM-BRENNSTOFFZELLENANORDNUNG UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



WO 01/093354 A3

(57) Abstract: The invention relates to a fuel cell system containing at least one polymer-electrolyte membrane (PEM) fuel cell with a polymer-electrolyte membrane (6) placed between a cathode catalyst layer (5) and an anode catalyst layer (7). The fuel cell also comprises gas diffusion layers (4, 8), which are located on both sides of the polymer-electrolyte membrane, and comprises at least one terminating layer (13), which rests against at least one of the gas diffusion layers. The fuel cell system is characterized in that the membrane (6), the catalyst layers (5, 7), the gas diffusion layers (4, 8) and the at least one terminating layer (13) of the fuel cell are, over their entire surfaces, joined to one another in a mechanically fixed, electrically conductive or electrochemically active manner by means of chemical bonding agents. The laminating processes are particularly suited for the use of PEM fuel cells in the mobile domain and for a planar configuration of the individual cells, in which a number of individual or double cells are adjacently located on a flat or curved surface.

(57) Zusammenfassung: Brennstoffzellenanordnung, enthaltend mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) angeordneten Polymerelektrolytmembran (6), beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8) und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für alle Bestimmungsstaaten
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

**(84) Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht

**(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts:**

28. November 2002

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

- hinsichtlich der Identität des Erfinders (Regel 4.17 Ziffer i) für alle Bestimmungsstaaten

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

---

wenigstens einer Abschlußschicht (13), dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6) die Katalysatorschichten (5, 7), die Gasdiffusionssschichten (4, 8) und die wenigstens eine Abschlußschicht (13) der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch chemische Bindemittel miteinander verbunden sind. Die Laminierungsprozesse eignen sich insbesondere bei dem Einsatz von PEM-Brennstoffzellen im mobilen Bereich sowie bei einer planaren Anordnungen der einzelnen Zellen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzel-oder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 01/06175

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
 IPC 7 H01M8/10 H01M8/24 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
 IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category ° | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No.  |
|------------|--|------------------------|
| X          | US 5 945 232 A (ERNST WILLIAM D ET AL)<br>31 August 1999 (1999-08-31)<br>column 9, line 26 - line 39; figure 5<br>column 7, line 44 - line 47<br>column 5, line 14 - line 17 | 1                      |
| Y          | -----  | 2,3,<br>8-10,<br>14-16 |
| Y          | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN<br>vol. 1996, no. 11,<br>29 November 1996 (1996-11-29)<br>-& JP 08 185875 A (TOKYO GAS CO LTD),<br>16 July 1996 (1996-07-16)<br>abstract<br>-----  | 2,3,<br>8-10,<br>14-16 |
|            | -----  | -/-                    |

 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex.

## ° Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

21 August 2002

Date of mailing of the international search report

28/08/2002

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No  
PCT/EP 01/06175

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|----------|--|-----------------------|
| Y        | GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS)<br>30 September 1998 (1998-09-30)<br>page 9, last paragraph -page 10, paragraph<br>2; figures 3,5<br>page 8, paragraph 2<br>----              | 2,3,8-10              |
| Y        | DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC)<br>10 December 1998 (1998-12-10)<br>column 5, line 5 - line 24; claims 1-4<br>----  | 2,3,8-10              |
| Y        | WO 00 02279 A (KOSCHANY PETRA ;MANHATTAN<br>SCIENT INC (US))<br>13 January 2000 (2000-01-13)<br>cited in the application<br>page 5, line 3 - line 5; claims 1,6;<br>figure 5<br>---- | 2,3,8-10              |
| A        | AT 393 045 B (SCHUETZ PETER DIPL ING DR)<br>25 July 1991 (1991-07-25)<br>page 5, line 28 - line 37; claim 1; figure<br>4<br>----   | 7                     |
| A        | EP 0 499 935 A (ABB PATENT GMBH)<br>26 August 1992 (1992-08-26)<br>----  |                       |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 01/06175

| Patent document cited in search report |   | Publication date |  | Patent family member(s)   | Publication date   |
|--|---|------------------|--|---|--|
| US 5945232                             | A | 31-08-1999       | AU<br>EP<br>JP<br>WO                                     | 3186299 A<br>1070361 A1<br>2002510851 T<br>9952164 A1   | 25-10-1999<br>24-01-2001<br>09-04-2002<br>14-10-1999   |
| JP 08185875                            | A | 16-07-1996       | NONE   |   |  |
| GB 2323700                             | A | 30-09-1998       | DE<br>US<br>CA<br>GB                                     | 19713250 A1<br>6080503 A<br>2233440 A1<br>2348047 A ,B  | 15-10-1998<br>27-06-2000<br>29-09-1998<br>20-09-2000   |
| DE 19823880                            | A | 10-12-1998       | DE<br>FR<br>GB<br>SE                                     | 19823880 A1<br>2764122 A1<br>2326017 A<br>9801942 A   | 10-12-1998<br>04-12-1998<br>09-12-1998<br>04-12-1998   |
| WO 0002279                             | A | 13-01-2000       | DE<br>AU<br>BR<br>CN<br>WO<br>DE<br>EP<br>JP<br>NO<br>TR | 19829142 A1<br>5616499 A<br>9911759 A<br>1307734 T<br>0002279 A2<br>19981229 D2<br>1095415 A2<br>2002520777 T<br>20006707 A<br>200003802 T2 | 05-01-2000<br>24-01-2000<br>03-04-2001<br>08-08-2001<br>13-01-2000<br>13-06-2001<br>02-05-2001<br>09-07-2002<br>29-12-2000<br>21-06-2001 |
| AT 393045                              | B | 25-07-1991       | AT   | 190489 A  | 15-12-1990   |
| EP 0499935                             | A | 26-08-1992       | DE<br>EP   | 4104841 A1<br>0499935 A1  | 20-08-1992<br>26-08-1992   |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In als Aktenzeichen  
PCT/EP 01/06175

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/10 H01M8/24 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBiete

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr.     |
|------------|--|------------------------|
| X          | US 5 945 232 A (ERNST WILLIAM D ET AL)<br>31. August 1999 (1999-08-31)<br>Spalte 9, Zeile 26 – Zeile 39; Abbildung 5<br>Spalte 7, Zeile 44 – Zeile 47<br>Spalte 5, Zeile 14 – Zeile 17 | 1                      |
| Y          | ---  | 2,3,<br>8-10,<br>14-16 |
| Y          | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN<br>vol. 1996, no. 11,<br>29. November 1996 (1996-11-29)<br>-& JP 08 185875 A (TOKYO GAS CO LTD),<br>16. Juli 1996 (1996-07-16)<br>Zusammenfassung<br>---     | 2,3,<br>8-10,<br>14-16 |



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

- \* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- \*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- \*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- \*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- \*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- \*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- \*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- \*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- \*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- \*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

21. August 2002

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

28/08/2002

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Ir  
nationales Aktenzeichen  
PCT/EP 01/06175

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| Y          | GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS)<br>30. September 1998 (1998-09-30)<br>Seite 9, letzter Absatz -Seite 10, Absatz<br>2; Abbildungen 3,5<br>Seite 8, Absatz 2<br>---                     | 2,3,8-10           |
| Y          | DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC)<br>10. Dezember 1998 (1998-12-10)<br>Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Ansprüche<br>1-4<br>---  | 2,3,8-10           |
| Y          | WO 00 02279 A (KOSCHANY PETRA ;MANHATTAN<br>SCIENT INC (US))<br>13. Januar 2000 (2000-01-13)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Seite 5, Zeile 3 - Zeile 5; Ansprüche 1,6;<br>Abbildung 5<br>--- | 2,3,8-10           |
| A          | AT 393 045 B (SCHUETZ PETER DIPLO. ING DR)<br>25. Juli 1991 (1991-07-25)<br>Seite 5, Zeile 28 - Zeile 37; Anspruch 1;<br>Abbildung 4<br>---  | 7                  |
| A          | EP 0 499 935 A (ABB PATENT GMBH)<br>26. August 1992 (1992-08-26)<br>-----  |                    |

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/06175

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument |   | Datum der Veröffentlichung |  | Mitglied(er) der Patentfamilie  |  | Datum der Veröffentlichung   |
|---|---|----------------------------|--|---|--|--|
| US 5945232                                      | A | 31-08-1999                 | AU<br>EP<br>JP<br>WO                                     | 3186299 A<br>1070361 A1<br>2002510851 T<br>9952164 A1   |  | 25-10-1999<br>24-01-2001<br>09-04-2002<br>14-10-1999   |
| JP 08185875                                     | A | 16-07-1996                 |  | KEINE   |  |  |
| GB 2323700                                      | A | 30-09-1998                 | DE<br>US<br>CA<br>GB                                     | 19713250 A1<br>6080503 A<br>2233440 A1<br>2348047 A ,B  |  | 15-10-1998<br>27-06-2000<br>29-09-1998<br>20-09-2000   |
| DE 19823880                                     | A | 10-12-1998                 | DE<br>FR<br>GB<br>SE                                     | 19823880 A1<br>2764122 A1<br>2326017 A<br>9801942 A   |  | 10-12-1998<br>04-12-1998<br>09-12-1998<br>04-12-1998   |
| WO 0002279                                      | A | 13-01-2000                 | DE<br>AU<br>BR<br>CN<br>WO<br>DE<br>EP<br>JP<br>NO<br>TR | 19829142 A1<br>5616499 A<br>9911759 A<br>1307734 T<br>0002279 A2<br>19981229 D2<br>1095415 A2<br>2002520777 T<br>20006707 A<br>200003802 T2 |  | 05-01-2000<br>24-01-2000<br>03-04-2001<br>08-08-2001<br>13-01-2000<br>13-06-2001<br>02-05-2001<br>09-07-2002<br>29-12-2000<br>21-06-2001 |
| AT 393045                                       | B | 25-07-1991                 | AT   | 190489 A  |  | 15-12-1990   |
| EP 0499935                                      | A | 26-08-1992                 | DE<br>EP   | 4104841 A1<br>0499935 A1  |  | 20-08-1992<br>26-08-1992   |